

先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム) 実施状況報告書(平成 25 年度)

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	自己組織化酸化物ナノワイヤを用いた極微デバイスによるグリーン・イノベーション
研究機関・ 部局・職名	大阪大学・産業科学研究所・准教授
氏名	柳田 剛

1. 当該年度の研究目的

当該年度の研究目的は以下の項目である。

- 自己組織化現象を用いて形成される酸化物ナノワイヤの本質的な形成メカニズムを探求し、従来技術では不可能であった機能性酸化物ナノワイヤ構造体を実現。
- 自己組織化酸化物ナノワイヤにおいて低消費電力不揮発性メモリ特性が発現することを実証し、その本質的なメカニズムを解明。

2. 研究の実施状況

当該年度においては、前年度から引き続き、自己組織化現象を介したナノワイヤ構造体の本質的な形成メカニズムを解明することを試みた。自己組織化現象を用いて精微なナノ構造を形成制御するためには、ナノスケールにおける物質輸送現象の理解が必要不可欠である。加えて、材料設計を行うためにはそのナノ物質輸送現象と元素との相関性を明らかにする必要がある。ナノサイズの液滴を用いて1次元のナノワイヤ構造を任意のサイズで任意の空間位置に形成することが可能なVLS自己組織化現象に着目し、気相-液相-固相の3相に跨る物質輸送現象を解明することを試みた。本VLS法を用いて1次元ナノワイヤ構造を形成するためには、固液界面における絶対選択的な結晶成長を行う必要がある。即ち、精密に制御された環境場で狙いの空間位置だけに結晶成長を行うことが要求される。理論計算と環境場を変化させた実験との比較から、固液界面における結晶成長が絶対選択的に発現するメカニズムを提案した。より具体的には、臨界核生成サイズが液相原子との相互作用によって固液界面において縮小することが本自己組織化現象の本質であることを突きとめた。この設計指針に従い、幾つかの新しい機能性酸化物材料のナノワイヤ化に初めて成功した。加えて、酸化チタン単結晶ナノワイヤの創製に成功し、その面方位がサイズに応じて変化することを初めて見出した。更に形成したナノワイヤ構造体をシリコン基板上でデバイス化し、低消費電力で駆動する不揮発性メモリを実証し、その本質的なメカニズムを解明する手がかりを得た。また、一本のナノワイヤにおける熱起電力測定を可能とする測定系の構築に成功した。

更に、ナノワイヤを基板の狙いの位置に配列制御する技術を確認した。加えて、一本のナノワイヤの熱起電力及び熱伝導率を測定するシステムを構築し、バルクを凌駕するナノワイヤの熱電性能を実証した。

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計9件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計7件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Scaling Effect on Unipolar and Bipolar Resistive Switching of Metal Oxides <u>Yanagida, T.</u>, K.Nagashima, K.Oka, M.Kanai, A. Klamchuen, B.H.Park and T.Kawai <i>Sci. Rep.</i> 3, 1657; DOI:10.1038/srep01657 (2013). (<i>Nature Publishing Group</i>) 2. Impact of Preferential Indium Nucleation on Electrical Conductivity of VLS Grown Indium-Tin-Oxide Nanowires Meng, G., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, H.Yoshida, M.Kanai, A.Klamchuen, F.Zhuge, Y.He, S.Rahong, X.Fang, S.Takeda and T.Kawai <i>J. Am. Chem. Soc.</i>, 135, 7033-7038 (2013) 3. DNA Manipulation and Separation in Sublithographic-scale Nanowire Array Yasui, T., S.Rahong, K.Motoyama, <u>T.Yanagida</u>, Q.Wu, N.Kaji, M.Kanai, K.Doi, K.Nagashima, M.Tokeshi, M.Taniguchi, S.Kawano, T.Kawai, and Y.Baba <i>ACS Nano</i>, 7, 3029-3035 (2013) 4. Crystal Plane Dependence of Critical Concentration for Nucleation on Hydrothermal ZnO Nanowires He, Y., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, F.Zhuge, G.Meng, B.Xu, A.Klamchuen, S.Rahong, M.Kanai, X.Li, M.Suzuki, S.Kai and T.Kawai <i>J. Phys. Chem. C</i> 117, 1197-1203 (2013) 5. Pressure-Induced Evaporation Dynamics of Gold Nanoparticles on Oxide Substrate Meng, G., <u>T.Yanagida</u>, M.Kanai, M.Suzuki, K.Nagashima, B.Xu, F.Zhuge, A.Klamchuen, Y.He, S.Rahong, S.Kai and T.Kawai <i>Phys. Rev. E</i>, 87, 012405 (2013) 6. Advanced Photoassisted Atomic Switches Produced Using ITO Nanowire Electrodes and Molten Photoconductive Organic Semiconductors A. Klamchuen, H. Tanaka, D. Tanaka, H. Toyama, G. Meng, S. Rahong, K. Nagashima, M. Kanai, <u>T. Yanagida</u>, T. Kawai and T. Ogawa <i>Adv. Mater.</i>, 25, 5893-5897 (2013) 7. Carrier type dependence on spatial asymmetry of unipolar resistive switching of metal oxides K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, U. Celano, S. Rahong, G. Meng, F. W. Zhuge, Y. He, B. H. Park and T. Kawai <i>Appl. Phys. Lett.</i>, 103, 173506 (2013) <p>(掲載済み一査読無し) 計1件</p> <ol style="list-style-type: none"> 8. 自己組織化酸化物ナノワイヤの極微デバイスによるグリーン・イノベーション(解説) 柳田 剛 化学工業 Vol.64 No.12 889-896 (2013) <p>(未掲載) 計1件</p> <ol style="list-style-type: none"> 9. Flux induced crystal phase transition in vapor-liquid-solid growth of indium-tin oxide nanowires G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, H. Yoshida, K. Nagashima, M. Kanai, F. W. Zhuge, Y. He, A. Klamchuen, S. Rahong, S. Takeda and T. Kawai <i>Nanoscale</i>, (2014) <i>in press</i>
<p>会議発表 計23件</p>	<p>専門家向け 計23件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1). “Material Design Rule for Nanoscale Memristive Switching” K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, A. Klamchuen, S. Rahong, G. Meng, M. Horprathum, F. W. Zhuge, Y. He, B. H. Park and T. Kawai The 12th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes, Kyoto, Japan, 2013.7.10-12 2). “Single Crystalline NiO Nanowires Grown via VLS Mechanism and Their Properties on Resistive Switching Memory” K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, G. Meng, S. Rahong, F. W. Zhuge, Y. He and T. Kawai Material Research Society Fall Meeting 2013, Boston, USA, 2013.12.1-6 3). “Impact of Preferential Indium Nucleation on Electrical Conductivity of VLS Grown Indium-Tin-Oxide Nanowires”

	<p>G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, H. Yoshida, M. Kanai, F. W. Zhuge, Y. He, A. Klamchuen, S. Rahong, S. Takeda, T. Kawai Material Research Society Fall Meeting 2013, Boston, USA, 2013.12.1-6</p> <p>4). “Rational Concept for Designing Metal Oxide Nanowires” F. W. Zhuge, K. Nagashima, A. Klamchuen, <u>T. Yanagida</u>, H. Yoshida, M. Kanai, S. Rahong, G. Meng, Y. He, M. Suzuki, S. Kai, S. Takeda and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>5). “Impact of Preferential Indium Nucleation on Electrical Conductivity of VLS Grown Indium-Tin-Oxide Nanowires” G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, H. Yoshida, M. Kanai, F. W. Zhuge, Y. He, A. Klamchuen, S. Rahong, S. Takeda and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>6). “Crucial Role of Material Flux on Growth Temperature for Vapor-Liquid-Solid Oxide Nanowire Growth” K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, H. Yoshida, M. Kanai, G. Meng, F. W. Zhuge, S. Rahong, Y. He, S. Takeda and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>7). “Carrier Type Dependence on Spatial Asymmetry of Unipolar Resistive Switching of Metal Oxides” K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, U. Celano, S. Rahong, G. Meng, F. W. Zhuge, Y. He, B. H. Park and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>8). “Flux Induced Crystal Phase Variation in Vapor-Liquid-Solid Growth of Multi-component Metal Oxide Nanowires” G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, H. Yoshida, M. Kanai, F. W. Zhuge, Y. He, A. Klamchuen, S. Rahong, S. Takeda and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>9). “Fundamental Design Rule for Nanowire Alignment on Water Favorable Pattern” Y. He, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, M. Kanai, G. Meng, F. W. Zhuge, S. Rahong and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>10). “Enhancement of thermoelectric properties via inhomogeneous radial dopant profile in Boron doped Si nanowires” F. W. Zhuge, <u>T. Yanagida</u>, N. Fukata, K. Uchida, M. Kanai, K. Nagashima, G. Meng, Y. He, S. Rahong and T. Kawai The 17th SANKEN International Symposium 2014, The 2nd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Human Sensing considering from the behavior of substances ranging from molecules to organisms, Osaka, Japan, 2014.1.21-22</p> <p>11). “単結晶 NiO ナノワイヤの VLS 形成における成長温度と供給フラックスの相関性” 長島 一樹, <u>柳田 剛</u>, 金井 真樹, Gang Meng, Sakon Rahong, Fuwei Zhuge, Yong He, 川合 知二 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013 年 9 月 16 日～20 日</p> <p>12). “Fundamental Design Rule for Precise Nanowires Positioning on Water Favorable Nano-pattern by Blade-coating Method” Yong He, <u>柳田 剛</u>, 長島一樹, 金井真樹, Gang Meng, Fuwei Zhuge, Sakon Rahong, 川合知二 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013 年 9 月 16 日～20 日</p>
--	--

	<p>13). "Impact of Preferential Indium Nucleation on Electrical Conductivity of VLS Grown Indium-Tin-Oxide Nanowires" Gang Meng, <u>柳田 剛</u>, 長島一樹, 吉田秀人, 金井真樹, Fuwei Zhuge, Yong He, Annop Klamchuen, Sakon Rahong, 竹田精治, 川合知二 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013年9月16日~20日</p> <p>14). "Thermopower Factor Measurement of Single Nanowires: On the Diameter Modulation to the Seebeck Coefficient and Electrical Conductivity" Fuwei Zhuge, <u>柳田 剛</u>, 長島一樹, 深田直樹, 金井真樹, Gang Meng, Yong He, 川合知二 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013年9月16日~20日</p> <p>15). "Pressure Induced Evaporation Dynamics of Gold Nanoparticles on Oxide Substrate" Gang Meng, <u>柳田 剛</u>, 金井真樹, 長島一樹, 川合知二 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013年9月16日~20日</p> <p>16). "VLS法により形成されたITO単結晶ナノワイヤの組成制御と輸送特性" 金井真樹, <u>柳田 剛</u>, Gang Meng, 長島一樹, 川合知二 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013年9月16日~20日</p> <p>17). "Sublithographic-Scale Nanowire Array for Long DNA Manipulation and Separation" Sakon Rahong, 安井隆雄, <u>柳田 剛</u>, 金井真樹, 長島一樹, 加地範匡, 馬場嘉信, 川合知二 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 京都, 2013年9月16日~20日</p> <p>18). "ユニポーラ型酸化物抵抗変化メモリにおける伝導パス形成機構のキャリアタイプ依存性" 長島一樹, <u>柳田 剛</u>, 金井真樹, Umberto Celano, Sakon Rahong, Gang Meng, Fuwei Zhuge, Yong He, Bae Ho Park, 川合知二 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014年3月17日~20日</p> <p>19). "紙資源を利用した超フレキシブル不揮発性メモリ" 長島一樹, 古賀大尚, Umberto Celano, 金井真樹, 北岡卓也, 能木雅也, <u>柳田 剛</u> 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014年3月17日~20日</p> <p>20). "Size Selective Rule of Nanowire Alignment by Solution based Coating Method" Yong He, 長島一樹, <u>柳田 剛</u>, 金井真樹, Gang Meng, Fuwei Zhuge, Sakon Rahong, 川合知二 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014年3月17日~20日</p> <p>21). "Enhancement of Thermoelectric Properties via Radial Dopant Distribution in Boron-doped Silicon Nanowires" Fuwei Zhuge, <u>柳田 剛</u>, 深田直樹, 内田 建, 金井真樹, 長島一樹, Gang Meng, Yong He, Sakon Rahong, 川合知二 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014年3月17日~20日</p> <p>22). "Flux Induced Crystal Phase Transition in Vapor-Liquid-Solid Growth of Indium-Tin Oxide Nanowires" Gang Meng, <u>柳田 剛</u>, 長島一樹, 金井真樹, Fuwei Zhuge, Yong He, Annop Klamchuen, Sakon Rahong, 川合知二 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014年3月17日~20日</p> <p>23). "Ultrafast and Wide Range Analysis of DNA Molecules Using Tunable Rigid Network Structure of</p>
--	--

様式19 別紙1

	<p>Solid Nanowires”</p> <p>Sakon Rahong, 安井隆雄, 柳田 剛, 金井真樹, 長島一樹, 加地範匡, 馬場嘉信, 川合知二</p> <p>第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 神奈川, 2014 年 3 月 17 日~20 日</p> <p>一般向け 計0件</p>
<p>図 書</p> <p>計1件</p>	<p>ナノワイヤを活用した超低消費電力不揮発性メモリ</p> <p>—ナノワイヤメモリスター—</p> <p>柳田 剛</p> <p>ナノワイヤ最新技術の基礎と応用展開(分担執筆)CMC出版、総12ページ 2013 年</p>
<p>産業財産権</p> <p>出願・取得状</p> <p>況</p> <p>計 0 件</p>	<p>(取得済み) 計0件</p> <p>(出願中) 計 0 件</p>
<p>Webページ</p> <p>(URL)</p>	<p>大阪大学・最先端・次世代研究開発支援プログラム</p> <p>http://www.osaka-u.ac.jp/ja/research/program_next</p> <p>大阪大学大型教育研究プロジェクト支援室・最先端・次世代研究開発支援プログラム</p> <p>http://www.lserp.osaka-u.ac.jp/index_jisedai.html</p>
<p>国民との科</p> <p>学・技術対話</p> <p>の実施状況</p>	<p>京都 立命館宇治高校 サイエンスカフェ</p> <p>柳田 剛</p> <p>2014年3月1日、参加人数20名程度</p> <p>国民との科学技術対話を行うために、大阪大学大型教育研究プロジェクト支援室と共同で、立命館宇治高校の高校生に向けてサイエンスカフェを開催し、自己組織化現象を用いた研究の面白さや将来への期待等について楽しく語り合うことが出来た。</p>
<p>新聞・一般雑</p> <p>誌等掲載</p> <p>計0件</p>	
<p>その他</p>	<p>特になし</p>

4. その他特記事項

特になし。

実施状況報告書(平成25年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されません

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	122,000,000	80,500,000	41,500,000	0	0
間接経費	36,600,000	24,150,000	12,450,000	0	0
合計	158,600,000	104,650,000	53,950,000	0	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	28,405,888	41,500,000	0	69,905,888	69,905,888	0	0
間接経費	9,065,610	12,450,000	0	21,515,610	21,515,610	0	0
合計	37,471,498	53,950,000	0	91,421,498	91,421,498	0	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	56,398,643	JSM-7610F 電界放出形走査電子顕微鏡 等
旅費	129,090	応用物理学会 研究発表 等
謝金・人件費等	12,636,870	特任研究員 雇用費 等
その他	741,285	論文印刷費 等
直接経費計	69,905,888	
間接経費計	21,515,610	
合計	91,421,498	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
電界放出形走査電 子顕微鏡	日本電子(株)製 JSM-7610F	1	29,977,500	29,977,500	H25/ 11/22	大阪大学
原子層堆積(ALD) 装置	米国 Ultratech/Cambri dgeNanoTech社 製 Savannah	1	15,540,000	15,540,000	H26/ 1/10	大阪大学
プラズマ処理装置	日本電子(株)製 JP-170(特別仕)	1	9,135,000	9,135,000	H26/ 3/13	大阪大学